

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 05-193913

(43)Date of publication of application : 03.08.1993

(51)Int.Cl.

C01B 13/32
C01B 33/18

(21)Application number : 04-025644

(71)Applicant : SHIN ETSU CHEM CO LTD
TOYOTA MOTOR CORP

(22)Date of filing : 16.01.1992

(72)Inventor : KONYA YOSHIHARU
TANAKA HIDEJI
KAMIYA SUMIO
ABE SAN

(54) PRODUCTION OF METAL OXIDE POWDER

(57)Abstract:

PURPOSE: To control the particle diameter of metal oxide powder when this metal oxide powder is obtd. by the oxidation combustion of metal powder.

CONSTITUTION: Metal powder, metal oxide powder and gaseous oxygen are introduced into a flame from a burner formed with combustible gas, the metal powder is continuously burned in the flame and the resulting metal oxide is grown as particles with the metal oxide powder as nuclei to produce metal oxide powder. At this time, the metal oxide powder to be introduced into the flame is fed with the gaseous oxygen as combustion sustaining gas and introduced into the flame from the oxygen feed hole in the burner.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 18.12.1998

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3253339

[Date of registration] 22.11.2001

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 特 許 公 報 (B 2)

(11)特許番号

特許第3253339号
(P3253339)

(45)発行日 平成14年2月4日(2002.2.4)

(24)登録日 平成13年11月22日(2001.11.22)

(51)IntCl.⁷

識別記号

F I

C 0 1 B 13/32
33/18

C 0 1 B 13/32
33/18

Z

請求項の数1(全 4 頁)

(21)出願番号 特願平4-25644

(22)出願日 平成4年1月16日(1992.1.16)

(65)公開番号 特開平5-193913

(43)公開日 平成5年8月3日(1993.8.3)

審査請求日 平成10年12月18日(1998.12.18)

(73)特許権者 000002060

信越化学工業株式会社

東京都千代田区大手町二丁目6番1号

(73)特許権者 000003207

トヨタ自動車株式会社

愛知県豊田市トヨタ町1番地

(72)発明者 紺谷 義治

群馬県安中市磯部2丁目13番1号 信越
化学工業株式会社 磯部工場内

(72)発明者 田中 秀二

新潟県中頸城郡頸城村大字西福島28番地
の1 信越化学工業株式会社 合成技術
研究所内

(74)代理人 100062823

弁理士 山本 亮一 (外1名)

審査官 安齋 美佐子

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 金属酸化物粉末の製造方法

1

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】 金属粉末、金属酸化物粉末および酸素ガスを可燃性ガスにより形成したバーナー火炎中に導入し、該火炎中で金属粉末を連続的に燃焼させ、得られた金属酸化物を該金属酸化物粉末を核として粒成長させる金属酸化物粉末の製造方法において、該金属粉末をキャリアガスとしての不活性ガスまたは空気に同伴させて、また、該金属酸化物粉末を支燃性ガスとしての酸素ガスに同伴させて、該金属粉末と該金属酸化物粉末とを異なるラインを用いて該バーナーの出口から該火炎中に供給することを特徴とする金属酸化物粉末の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は金属酸化物粉末の製造方法、特に、バーナー火炎中での燃焼により生成した金

2

属酸化物粉末を粒成長させてなる金属酸化物粉末の製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 金属酸化物粉末の製造方法については、金属粉末を火炎中に導入し、酸素含有雰囲気下で連続的に爆発燃焼を発生させる方法が公知とされており(特開昭60-255602号公報参照)、これによれば酸化チタン、酸化ジルコニウム、酸化アルミニウム、二酸化けい素などを超微粒子状で熱効率、量産性よく生産することができる。とされている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 しかし、この方法では金属粉末が溶融微細化し、蒸発して酸化燃焼する一連の工程が瞬時に並行して起こるために、生成した金属酸化物粉末どうしを衝突合体させて粒成長させることが困難

であった。そのため、これについては金属粉末と金属酸化物粉末との混合物を火炎中に供給するということも提案されている（特開昭 6 4 - 2 4 0 0 4 号公報参照）が、金属粉末と金属酸化物粉末を予じめ混合すると両者は粒子径が異なるために、その混合比率によって均一に混合できる範囲に制約があり、これにはまた機械的混合において不純物が混入し易いことから高純度品の取得には適さないという欠点もある。

【0 0 0 4】また、この金属粉末と金属酸化物粉末を混合するときには、両者の粒径が大きく異なるために両者間にはその流動特性に明らかな差があり、したがってこの両者を同一のラインでキャリアガスによって同伴すると、ここに脈動が生じて分級、つまり粉末の分離が起り、両者を均一な混合組成で安定に供給することが困難となる。したがって、この場合にこの 2 種類の粉末を均一に安定供給するにはキャリアガスの流量を金属粉末単独の場合にくらべて 2 倍以上とする必要があるのであるが、このようにすると火炎中での粉塵濃度が減少するために生成する金属酸化物粒子同志の衝突合体の効率が低下するので、これでは金属酸化物粉末の粒子径粗大化は実現できなくなるという不利がある。

【0 0 0 5】なお、このキャリアガスとしては通常酸素ガスが使用され、金属粉末はこの酸素ガスと反応するのであるが、この場合には反応容器内に形成された火炎が粉末供給ラインに逆火するために金属酸化物の製造ができなくなることもあり、この金属酸化物粉末を粗大化することは困難なものとされている。

【0 0 0 6】

【課題を解決するための手段】本発明は、このような不利、欠点を解決することのできる金属酸化物粉末の製造方法に関するものであり、金属粉末、金属酸化物粉末および酸素ガスを可燃性ガスにより形成したバーナー火炎中に導入し、該火炎中で金属粉末を連続的に燃焼させ、得られた金属酸化物を該金属酸化物粉末を核として粒成長させてなる金属酸化物粉末の製造方法において、該金属粉末をキャリアガスとしての不活性ガスまたは空気に同伴させて、また、該金属酸化物粉末を支燃性ガスとしての酸素ガスに同伴させて、該金属粉末と該金属酸化物粉末とを異なるラインを用いて該バーナーの出口から該火炎中に供給することを特徴とするものである。

【0 0 0 7】

【発明の実施の形態】すなわち、本発明者らは、金属粉末と金属酸化物粉末とを酸化燃焼火炎中に供給して生成する金属酸化物粉末の粒成長を制御する方法について種々検討した結果、金属酸化物粉末を支燃性ガスとしての酸素ガスに同伴させ、また、金属粉末をキャリアガスとしての不活性ガスまたは空気に同伴させて、該金属粉末と該金属酸化物粉末とを異なるラインを用いて搬送してバーナーの出口から火炎中に供給すると、燃焼火炎中における金属酸化物濃度が上がるので、金属酸化物同志の

衝突合体化が促進され、さらに金属粉末の酸化燃焼により得られた金属酸化物粉末の温度が酸素に同伴して供給された金属酸化物粉末の温度よりはるかに高いので、熱泳動により金属酸化物粉末が合体し、粒成長する、さらに、この火炎中に供給される金属酸化物粉末が金属粉末の酸化燃焼による反応熱を吸収するので、火炎中の金属粉末の熔融微細化と蒸発速度が抑制され、燃焼により生成する金属酸化物粉末の粒子径が大きくなるということを見出し、これによれば目的とする金属酸化物粉末の粒子径を制御することができることを確認して、本発明を完成させた。以下にこれをさらに詳述する。

【0 0 0 8】

【0 0 0 9】本発明における金属粉末からの金属酸化物粉末の製造は公知の方法に準じて行なわれる。したがって、この金属としてはシリコン、アルミニウム、マグネシウム、チタン、ジルコニウム、その他ムライト組成を形成するアルミニウムとシリコンとの混合物などが例示される。この金属は本発明の目的物が金属酸化物粉末であることから、金属粉末として供給されるが、高純度の金属酸化物粉末を得るためには純度が 9 9 . 9 % 以上のものとするのがよい。

【0 0 1 0】この金属粉末は、火炎中に別途酸素ガスが供給されているので、バーナー火炎中における酸化燃焼によって金属酸化物とされるのであるが、このもののバーナーへの導入はキャリアガスへの同伴によって行なわれる。このキャリアガスとしては窒素、ヘリウム、アルゴンなどの不活性ガスまたは空気をいれればよい。この場合における金属粉末の粒度分布やキャリアガス中の金属粉末濃度は、バーナー火炎中で粉塵爆発に必要な粉塵雲を形成する条件の範囲内にあればよく、具体的には 2 0 0 メッシュの篩を通過し、なだらかな粉度分布をもち、爆発下限以上の粉塵濃度をもつものとすればよいが、好ましくは粒子径が 1 0 μ m 以下の微粉を含むものとするのがよい。

【0 0 1 1】この金属粉末はバーナー火炎中での爆発燃焼によって金属酸化物粉末とされるのであるが、この金属粉末の連続爆発を安定して形成させるための種火としては可燃性ガスによる燃焼火炎を使用することがよい。この可燃性ガスとしてはメタン、プロパンなどのような化学式 $C_x H_{2x+2}$ で示される炭化水素ガスまたは水素ガスをいれればよいが、この種火用の燃焼火炎は粉塵爆発を形成するのに必要な最小着火エネルギーを与えればよいので、反応容器の熱負荷を減らすということからも可燃性ガスをできるだけ少ないものとするのがよい。

【0 0 1 2】この金属粉末および燃焼用ガスは通常室温で供給されるが、反応容器は燃焼火炎温度が 1, 0 0 0 $^{\circ}$ C 以上となるためにアルミナなどの耐熱材料で内張りしたものとすることがよく、これは煙道側に排風機を設けて吸引し、圧力が大気圧基準で - 2 0 0 mm Hg から - 1 0 mm Hg の負圧となるようにすることがよい。

【0013】この金属粉末はキャリアガスに同伴されてバーナーから反応容器内に放出され、種火火炎によって着火し、火炎中に別途供給される支燃性ガスとしての酸素ガスによって連続的に爆発燃焼して金属酸化物粉末となり、反応容器中の捕集機で回収されるのであるが、この場合には酸化反応熱が大きいことから、生成する金属酸化物粉末の粒子径を制御することができず、このようにして得られた金属酸化物粉末は通常その粒子径は微細なものとなる。

【0014】本発明による金属酸化物粉末の製造方法は、金属粉末を燃焼させることからなる金属酸化物粉末の製造方法において、燃焼火炎中に金属酸化物粉末を供給して、燃焼して形成された金属酸化物粉末を粒成長させるものであるが、ここに供給される金属酸化物粉末は、本発明の方法とは別の方法で作られたものであっても、本発明で得られたものを再使用するものであってもよい。また、このものの純度は、目的とする金属酸化物粉末を高純度なものとするときには99.9%以上の純度のものとするのがよいが、この純度に限定はなく、さらにこのものは粒度が $10\mu\text{m}$ 以下で終末沈降速度が遅いものとするのがよい。

【0015】しかし、本発明において、この供給される金属酸化物粉末は、支燃性ガスとしての酸素ガスに同伴させて、金属粉末を酸化燃焼させるための前記した火炎バーナーの酸素供給口に供給し、これを火炎中に供給することが必要とされる。したがって、この金属酸化物粉末は、ホッパーから定量供給機を用いて切り出し、酸素気流中に均一に分散させ、金属粉末を供給するバーナーの酸素供給口から反応容器内に形成されている燃焼火炎中に吹き込むようにすればよい。

【0016】金属酸化物粉末をこのようにして火炎中に供給すると、1)燃焼火炎中における金属酸化物濃度が上がるので、金属酸化物同志の衝突合体が促進される、2)金属粉末の酸化燃焼によって生成した金属酸化物粉末の温度は酸素に同伴されて供給される金属酸化物の温度よりはるかに高いので、熱泳動によってここに供給された金属酸化物粉末を核として燃焼により生成した金属酸化物粉末が合体し、粒成長する、3)この火炎中に供給された金属酸化物粉末が金属粉末の酸化燃焼による反応熱を吸収し、火炎全体の温度が低下されるので、火炎中の金属粉末の熔融微細化、蒸発速度が抑制され、結果において燃焼により生成した金属酸化物粉末の粒子径が大きくなる、という結果が与えられるので、これによれば、金属粉末と金属酸化物粉末との混合比を変えることによって製造される金属酸化物粉末の粒子径を制御することができるという有利性が与えられる。

【0017】なお、このようにして得られた金属酸化物粉末は燃焼排ガスと共に排風機で吸収されるので、冷却後、サイクロン、バグフィルターなどで回収すればよく、これによれば所定の粒子径をもつ金属酸化物粉末を

容易に得ることができる。

【0018】つぎに本発明による金属酸化物粉末製造方法に使用される反応装置を添付の図面について説明する。図1はこの反応装置の縦断面図を示したものであるが、金属粉末2は原料ホッパー1から定量供給機3で切り出され、キャリアガス4に同伴され、導入管5を通過してバーナー11に導かれる。また金属酸化物粉末7はホッパー6から定量供給機で切り出され、酸素ガス9に同伴され、導入管10を通過してバーナー11に導かれる。金属粉末2と金属酸化物粉末7は耐熱レンガ13で内張りされている反応容器12に放出され、あらかじめ可燃性ガスにより形成されている種火火炎により着火し、燃焼火炎14を形成し、燃焼反応により生成した金属酸化物粉末は排ガスと共に煙道15を通過して冷却され、金属酸化物粉末は捕集機16で分離捕集され、排ガスは排風機17により排気される。

【0019】

【実施例】つぎに本発明の実施例、比較例をあげる。
実施例、比較例

図1に示した反応装置において、反応容器はアルミナレンガで内張りした内径が 350mm 、高さが $2,500\text{mm}$ の円筒状のものを使用し、反応容器内の圧力は排風機で吸引して 100mmHg の負圧とし、この反応容器内には種火用バーナーからプロパンガスを $0.1\text{Nm}^3/\text{時}$ 、酸素ガスを $0.7\text{Nm}^3/\text{時}$ で供給して、あらかじめ種火火炎を形成しておいた。

【0020】ついで、このバーナーに平均粒子径 $23\mu\text{m}$ 、純度99.5%のシリコン粉末 $2.5\text{kg}/\text{時}$ をキャリアガスとしての窒素ガス $3\text{Nm}^3/\text{時}$ に同伴して供給すると共に、このバーナーには平均粒子径が $0.5\mu\text{m}$ で純度が99.7%であるシリカ粉末 $0.6\text{kg}/\text{時}$ を酸素ガス $2.4\text{Nm}^3/\text{時}$ で同伴して供給し、シリコン粉末を着火させて燃焼火炎を形成させた。このときのアルミナレンガの内側温度を白金・ロジウム熱電対で測定したところ、最高 $1,320^\circ\text{C}$ を示した。また生成したシリカ粉末を透過顕微鏡(TEM)で観察したところ、真球状のアモルファスで平均粒子径が $4.0\mu\text{m}$ のものであり、これは純度分析で99.9%というものであった。なお、これを3時間運転したときにバグフィルターに捕集されたシリカ粉末は 17.2kg であり、収率は93%であった。

【0021】しかし、比較のためにシリコン粉末とシリカ粉末とを混合してこれを原料ホッパー1から供給したほかは上記した実施例と同じ方法でシリカ生成をしたところ、生成したシリカ粉末の平均粒子径は経時で $1.0\mu\text{m}$ から $4.0\mu\text{m}$ まで大きく変動し、その収率は90%であった。また、これについてはキャリアガスを酸素ガスとしたところ、瞬時に火炎がシリコン粉末とシリカ粉末の混合供給ラインまで逆火したので運転を中止した。

【0022】

【発明の効果】本発明によれば、燃焼火炎中における金属酸化物粉末の濃度が上がるので金属酸化物同士の衝突合体化が促進され、金属粉末の酸化燃焼により得られる金属酸化物粉末の温度がここに添加される金属酸化物粉末の温度よりはるかに高いので、熱泳動により金属酸化物粉末が合体化し、粒成長する、またここに供給される金属酸化物粉末が金属粉末の酸化燃焼による反応熱を吸収するので、火炎中の金属粉末の熔融微細化、蒸発速度が抑制される、ということから目的とする金属酸化物粉末の粒子径がここに供給される金属酸化物粉末の使用量によって制御できるという有利性が与えられる。

【図面の簡単な説明】

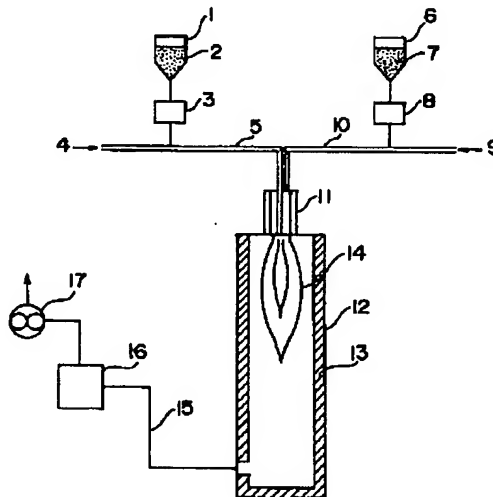
*

* 【図1】 本発明の金属酸化物粉末の製造方法に使用される反応装置の縦断面図を示したものである。

【符号の説明】

- | | | |
|-------------|-------------|---------|
| 1 ……原料ホッパー、 | 2 ……金属粉末、 | 3 …… |
| ……定量供給機、 | 4 ……キャリアガス、 | |
| 5 ……導入管、 | 6 ……ホッパー、 | 7 …… |
| ……金属酸化物粉末、 | 8 ……定量供給機、 | 9 …… |
| ……酸素ガス、 | 10 ……導入管、 | 11 …… |
| …バーナー、 | 12 ……反応容器、 | 13 …… |
| 10 耐熱レンガ、 | 14 ……燃焼火炎、 | 15 ……煙 |
| 道、 | 16 ……捕集機、 | 17 ……排風 |
| 機。 | | |

【図1】



フロントページの続き

(72)発明者 ▲神▼谷 純生
愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内
(72)発明者 安部 賛
愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(56)参考文献 特開 昭64-24004 (J P, A)

(58)調査した分野(Int.Cl.⁷, D B名)

C01B 13/32

C01B 33/18